

Effects of High-temperature Annealing of CeO₂ Buffer Layers on the Surface Morphology of YBa₂Cu₃O_{7-δ} Films on CeO₂-buffered R-cut Sapphire Substrates

CeO₂ 완충층에 대한 고온 열처리가 CeO₂ 완충층을 지닌 R-cut 사파이어 기판 위에 성장된 YBa₂Cu₃O_{7-δ} 박막의 표면상태에 미치는 영향

J. H. Lee, W. I. Yang, J. M. Jang, J. S. Ryu, V. A. Komashko
and Sang Young Lee

이재훈, 양우일, 장정문, 류재수, V. A. Komashko, 이상영

Department of Physics and Center for Advanced Materials and Devices,
KonKuk University, Seoul 143-701, Korea

건국대학교 물리학과, 신소재 및 소자연구센터

YBa₂Cu₃O_{7-δ} (YBCO) films grown on CeO₂-buffered r-cut sapphire substrates (CbS's) were prepared and their structural and electrical properties were measured. Post-annealed CeO₂ films were used as buffer layers for the experiments. It turned out that the YBCO films grown on post-annealed CbS's had the rms roughness of less than 20 Å and peak-to-peak roughness of about 30 Å when the YBCO film thickness was 3000 Å. Meanwhile, YBCO films on in-situ grown CeO₂ buffer layers on r-cut sapphire substrates appeared to have the peak-to-peak roughness of more than 450 Å. X-ray diffraction data revealed that the YBCO films were epitaxially grown along the c-axis with the typical FWHM of (005) θ - 2θ peak about 0.16 ° and $\Delta\omega$ of the (005) peak about 0.5 °. $T_c > 87$ K, $\Delta T < 1$ K and $R(300K)/R(100K) \geq 3$ were observed from the YBCO films. Applicability of the YBCO films for high-frequency applications was described.

1. 서 론

CeO₂-buffered r-cut sapphire 기판 (CbS) 위에 우수한 특성의 YBa₂Cu₃O_{7-δ} (YBCO) 박막을 성장시키는 연구는 최근 많은 연구가 이루어지고 있는 연구분야 중 하나인데 [1], CbS 위에 에피 성장된 YBCO 박막은 송신기용의 마이크로파 소자를 제작하는데 있어서 가장 적합한 것으로 여겨지고 있다. 현재 수신기용의 마이크로파 소자 제작 시 (100) LaAlO₃ (LAO) 기판 위에 성장된 YBCO 박막이 주로 이용되고 있는데 이는 LAO 기판 위에 성장된 YBCO 박막이 i) 10 GHz, 77 K에서 200 μΩ 정도의 작은 표면저항을 지닐 수 있는 것으로 보고되고 있고, ii) LAO 기판의 loss tangent가 비교적 작은 값을 지니고 있으며, iii) LAO 기판의 유전율이 25 이상의 큰 값을 지니므로 YBCO를 이용한

회로의 집적화가 가능하기 때문이다. 한편 송신기 모듈 내의 마이크로파 소자의 경우처럼 마이크로파 소자가 처리해야 하는 신호의 크기가 클 경우에는 기판의 열전도도가 중요한 문제가 되는데 이는 기판의 열전도도가 작을 경우 송신기모듈 내의 소자에서 발생하는 열이 쉽게 분산될 수 없기 때문이다. 이러한 점에서 LAO 기판 위의 YBCO 박막성장예에 대한 연구와 함께 사파이어 기판 위에 YBCO 박막을 성장시키는 연구가 많은 연구자들의 관심의 대상이 되고 있는데 이는 사파이어 기판의 열전도도가 LAO 기판에 비해 20 배 이상 우수하다는 점에 기인한다. YBCO 고온초전도 박막의 제작 시 사파이어 기판을 사용하는 이유를 정리하면 i) LAO 기판에 비해 열전도도가 20 배 이상 뛰어나다는 것과, ii) 사파이어의 loss tangent가 300 K 및 77 K에서 각각 10⁻⁵와 10⁻⁷

정도의 매우 작은 값을 지닌다는 것 [2], 그리고 iii) LAO 의 경우 직경 2 인치 정도의 기판까지 준비가 가능한데 비해 사파이어 기판의 경우 직경 4 인치 이상의 기판까지 만들 수 있다는 점 등을 들 수 있다. 그러나 무엇보다도 YBCO 박막 성장용으로 사파이어 기판을 사용하게 된 가장 중요한 이유로서는 CeO₂ 박막을 r-cut 사파이어 기판 위에 성장시킬 경우 에피 성장이 가능하며 에피 성장된 CeO₂ 박막을 완충층 (buffer layer)으로 하여 YBCO 박막이 r-cut 사파이어 기판 위에 에피 성장될 수 있음을 들 수 있는데 CeO₂ 완충층은 YBCO와 격자상수가 잘 일치할 뿐 아니라 YBCO와 사파이어 간의 반응을 막아주는 것으로 알려져 있다. 참고로 CeO₂는 790 °C 까지 YBCO와 반응하지 않고 [3] 사파이어와는 1000 °C 까지 반응하지 않는 것으로 알려져 있으며 [4] r-plane (혹은 [1102] 평면) 상의 격자 배열은 거의 직사각형 모양을 띠고 있고 [1011] 및 [1210] 방향으로의 격자간격은 각각 0.512 nm와 0.4759 nm 인 것으로 알려져 있다. 이러한 점에서 이 두 방향으로의 사파이어와 CeO₂의 격자상수의 차이가 각각 5.7%와 13.7%의 비교적 큰 차이를 보이고 있음에도 불구하고 CeO₂와 YBCO 간의 격자상수의 차이는 1% 미만의 매우 작은 차이를 보이기 때문에 YBCO의 CeO₂ 위의 에피 성장이 가능한 것으로 여겨지고 있다. 이뿐 아니라 CeO₂의 열팽창계수가 YBCO 박막과 사파이어의 열팽창계수의 중간 값을 지닌다는 사실도 CeO₂의 buffer layer로서의 효용성을 말해주는 것이라 할 수 있는데 YBCO 박막의 열팽창계수는 $\alpha_{YBCO} = 13 \times 10^{-6} K^{-1}$, 사파이어의 열팽창계수는 $\alpha_{Al_2O_3} = 6 \times 10^{-6} K^{-1}$ 인 반면 CeO₂의 열팽창계수는 $\alpha_{CeO_2} = 11.6 \times 10^{-6} K^{-1}$ 로서 α_{YBCO} 와 $\alpha_{Al_2O_3}$ 의 중간크기이다.

R-cut 사파이어 기판 위에 CeO₂ buffer layer를 성장시키는 데는 전자빔 증착법 [5, 6], 레이저 증착법 [7, 8], 유기금속을 이용한 화학적 증착법 [9, 10], 스퍼터링 법 등 [1, 2, 11] 많은 방법이 사용되고 있는데 CeO₂ 박막의 표면상태와 결정성장상태, 결정성장방향, 그리고 박막 내의 산소함유량은 이러한 박막 성장법에 상관없이 증착 조건에만 크게 의존하는 것으로 알려져 있으며 구체적으로 증착 조건이 성장된 CeO₂ 박막의 특성에 어떤 영향을 미치는 가는 아직 정확히 알려져 있지 않다. CeO₂-buffered r-cut sapphire 기판 (CbS) 위에 성장된 YBCO 박막이 지니는 특성 들 중 개선되어야 할 점으로서 성장된 YBCO 박막의 표면 거칠기 (surface roughness)에 대한 것을 들 수 있다.

YBCO 박막을 이용하여 고주파용의 미세회로를 제작할 경우나 혹은 조셉슨 접합을 이용한 초전도양자 간섭소자 (SQUID)를 제작하고자 할 경우에는 성장된 YBCO 박막의 표면 거칠기가 중요한 문제가 되는데 이는 고주파소자로의 응용 시 표면 거칠기가 큰 박막의 경우 신호의 손실이 커지게 된다는 사실과 조셉슨 접합을 이용한 소자의 제작 시 박막의 표면이 매끄러워야 보다 우수한 특성의 조셉슨 접합의 제작이 가능하게 됨에 기인한다. CbS 위에 성장된 YBCO의 표면 거칠기는 LAO 기판 위에 성장된 YBCO 박막에 비해 일반적으로 큰 값을 지니게 되는데 이는 LAO 기판 자체의 표면 거칠기를 매우 작게 할 수 있음에 비해 CeO₂ 완충층 위에 YBCO 박막을 성장시키는 경우에는 CeO₂ 완충층의 거칠기 및 특성에 따라 CeO₂ 완충층 위에 성장된 YBCO 박막의 거칠기가 결정되기 때문이다. Graboy 등은 r-cut sapphire 기판 위에 성장된 CeO₂ 박막의 표면 거칠기가 CeO₂ 박막의 성장 후 post-annealing 과정을 거치게 되면 대단히 향상 된다는 보고를 한 바 있는데 [10], CbS 위에 성장된 YBCO 박막의 표면 거칠기에 대한 측정을 하지 않았기 때문에 CeO₂ 박막에 대한 post-annealing 과정이 그 위에 성장된 YBCO 박막의 표면 거칠기를 실제로 어느 정도 개선시키는 효과를 주었는지에 대해서는 알려진 바 없다. 참고로 Zaitsev 등이 보고한 바 [12] CbS 위에 성장된 250 nm 두께의 YBCO 박막의 peak-to-peak 표면 거칠기 (R-factor라고 함)는 20 nm 정도로서 이 정도의 표면 거칠기는 LAO 기판 위에 성장된 같은 두께의 YBCO 박막의 표면 거칠기와 비교할 때 10 배 이상의 값이다.

우리는 본 연구에서 CbS 위에 성장된 YBCO 박막의 표면상태를 포함하는 구조적 특성과 마이크로 파 영역에서의 표면저항을 포함하는 전기적 특성에 대한 내용을 다루었다. 성장된 CeO₂ 완충층을 산소분위기에서 후열처리 (post-annealing)한 경우에 CbS 위에 성장된 YBCO 박막의 특성이 어떻게 변하는가도 여기에서 연구하였다. 연구 결과 후열 처리된 CbS 위에 성장된 140 nm 두께와 300 nm 두께의 YBCO 박막의 R-factor가 각각 2.3 nm와 4 nm로 측정되어 표면특성이 매우 우수한 것으로 나타났는데 이러한 결과는 본 연구에서 처음 밝혀진 것으로 Zaitsev 등이 보고한 표면 거칠기에 비해 1/6 정도의 작은 값에 해당된다.

우리는 또한 성장된 후 후열처리된 CeO₂ 완충층의 특성과 이러한 완충층 위에 성장된 YBCO 박막의

특성이 이미 발표된 결과와 어떻게 비교되는 지도 본 연구를 통하여 논의하였다.

2. 실험

CeO₂ 완충층은 on-axis rf-스퍼터링 방법으로 r-cut 사파이어 기판 위에 성장되었다. 이를 위하여 성장된 박막과 같은 조성의 타겟이 사용되었는데 타겟의 지름과 두께는 각각 50 mm와 4 mm 이다. 아르곤 가스와 산소가스의 분압 비는 3:1에서 10:1의 값이 사용되었으며 박막 성장 시 사용한 전체 기체압력은 40 ~ 100 mtorr 였다. CeO₂의 증착률은 분당 4 nm의 비교적 큰 값부터 분당 0.75 nm 정도의 비교적 작은 값까지 사용되었는데 성장된 CeO₂의 두께는 17 ~ 100 nm 이다. 박막 성장 시 기판의 온도는 섭씨 780 도로 하였으며 기판과 히터와의 열적 접촉을 좋게 하기 위하여 silver paste가 사용되었다. 여기서 한가지 언급할 것은 기판의 온도가 낮을 경우에 CeO₂의 (111) 상과 (100) 상이 동시에 나타나게 된다는 것이다 [13]. YBCO 박막은 같은 조성을 지닌 단일 타겟을 이용하여 dc-마그네트론 스퍼터링 법으로 성장되었는데 이러한 YBCO 박막의 성장 시 Cbs 기판이 이용되었으며 기판의 온도는 730 °C, 기체의 총압력은 100 mtorr, 아르곤과 산소의 분압 비는 4 대 1 이었고 성장된 YBCO 박막의 두께는 약 100 nm~ 300 nm 정도이다. 성장된 CeO₂와 YBCO 박막의 구조는 X선 회절분석과 AFM, 그리고 SEM 등의 방법으로 분석되었다. 그리고 YBCO 박막에 대한 전기적 특성을 측정하기 위하여 YBCO 박막의 직류저항과 마이크로파 영역에서의 표면저항이 측정되었다.

3. 결과 및 논의

1. Growth of CeO₂ buffer layers on r-cut sapphire substrates

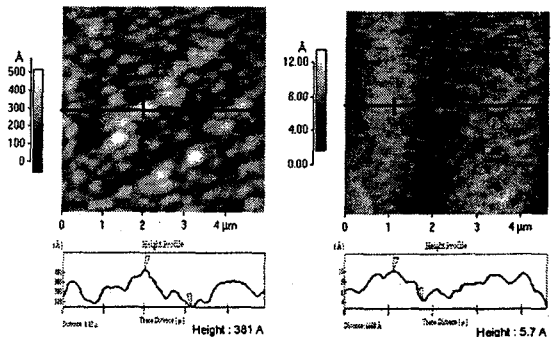
(표 1)은 기체의 총압력이 40 mtorr, 아르곤 대 산소의 가스압력비가 3 : 1이고 박막의 증착율이 분당 1.5 ~ 4 nm인 상태로 CeO₂ 박막을 성장시킨 경우에 CeO₂ 박막의 두께에 따른 CeO₂ 박막의 표면상태에 대한 변화를 기술한것이다.

여기서 R-factor는 AFM을 이용하여 측정한 표면 측정 결과로부터 구한 것인데 측정된 표면 영역에서 가장 높은 점과 가장 낮은 점 사이의 높이의 차를 의미하며 CeO₂ 박막의 두께가 30 nm에서 80 nm로

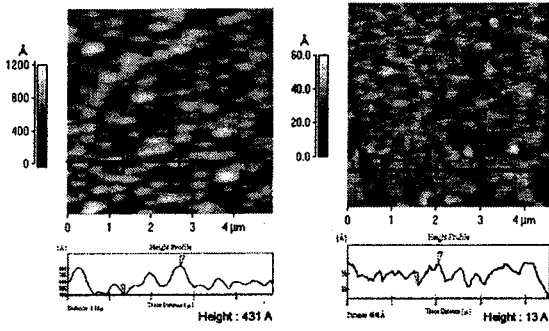
(표 1) 박막 성장률과 전체 기체압력이 다른 상태에서 780 °C에서 rf magnetron-sputtering 방법으로 성장된 여러 두께의 CeO₂ 박막에 대한 박막 거칠기의 1000 °C에서의 후열처리 (post-annealing)에 따른 변화. 여기서 'O'는 post-annealing 된 박막을 뜻하고 'X'는 in-situ 성장된 상태 그대로의 박막을 뜻한다.

Sample No.	Thickness (Å)	Deposition rate (Å/m)	Total Pressure	Post-annealing	Peak to peak roughness (Å)
Ce-1	800	40	40	X	437
				O	13
Ce-2	600	30	70	X	381
				O	5.7
Ce-3	400	20	40	X	305
				O	48
Ce-4	300	15	40	X	173
				O	73
Ce-5	450	7.5	70	X	6.7
				O	2.8
Ce-6	450	7.5	100	X	3.3
				O	4.1

증가함에 따라 R-factor의 크기도 17 nm에서 44 nm로 증가했음을 알 수 있다 (그림 1a와 2a 참조). 여기서 한가지 주목할 사실은 성장된 CeO₂ 박막에 대해 1000 °C의 온도에서 산소분위기 하에서 후열처리 (post-annealing)된 경우 CeO₂ 박막의 표면상태가 현저하게 개선되었다는 것이다. 예로서 후열 처리 과정을 거친 후에 30 nm 두께의 CeO₂ 박막의 R-factor는 17 nm에서 7 nm 로 개선 되었으며 80 nm의 CeO₂ 박막의 R-factor는 44 nm에서 1.3 nm로 현저하게 개선됨을 관측하였다 (그림 1b와 2b 참조).



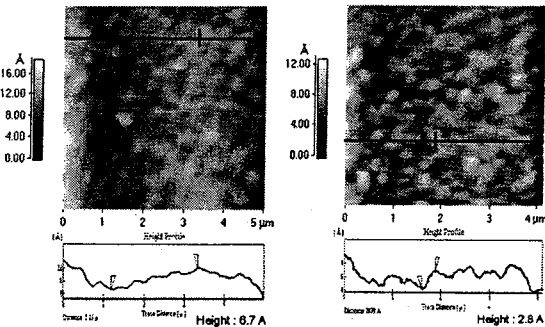
(그림 1) R-cut 사파이어 기판 위에 성장된 30 nm 두께의 CeO₂ 박막의 표면에 대한 (a) post-annealing 전과 (b) post-annealing 후의 원자현미경 (AFM) 사진.



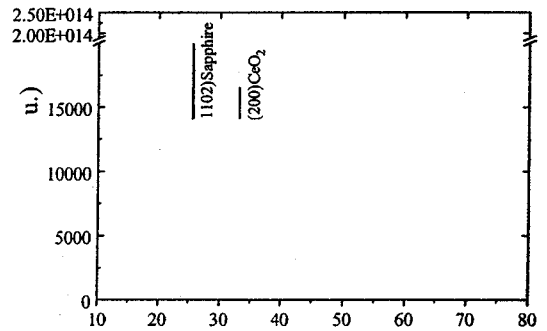
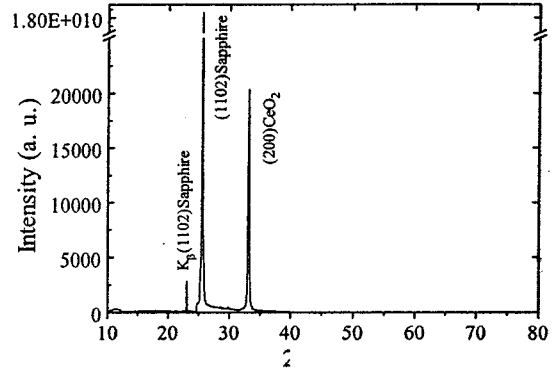
(그림 2) R-cut 사파이어 기판 위에 성장된 80 nm 두께의 CeO_2 박막의 표면에 대한 (a) post-annealing 전과 (b) post-annealing 후의 원자현미경 (AFM) 사진.

또한 70 mtorr의 총 압력에서 분당 3 nm의 증착률로 성장한 60 nm 두께의 CeO_2 박막의 경우 성장 후 측정된 R-factor가 38 nm의 큰 값을 지녔지만 1000 °C에서의 후열처리 후에는 0.57 nm의 매우 작은 R-factor를 지니게 됨을 확인할 수 있었다. CeO_2 박막의 증착률의 변화가 R-factor에 주는 영향도 연구되었는데 70 ~ 100 mtorr의 압력에서 분당 0.75 nm의 증착률로 성장된 CeO_2 박막의 R-factor는 0.67 nm 정도의 작은 값을 지니며 이러한 값이 1000 °C에서의 후열처리 과정을 통하여 0.28 nm의 보다 개선된 값을 지니게 됨을 확인하였다 (그림 3a, 3b 참조).

우리는 또한 성장된 CeO_2 박막의 구조에 대해 X선 회절분석실험을 행하였는데 (그림 4a)와 (그림 4b)는 [표 1]의 Ce-5 sample에 대한 이러한 회절분석의 결과로서 post-annealing 여부에 상관없이 박막으로부터 (100) peak 만이 관측되고 있음을 알 수 있다. 이것은 cubic 구조의 CeO_2 박막이 c 축 방향으로 잘 에피 성장되었음을 보여주며 이러한 결과는 30 ~ 100 nm의 두께로 in-situ 성장된 CeO_2 박막의 경우에도

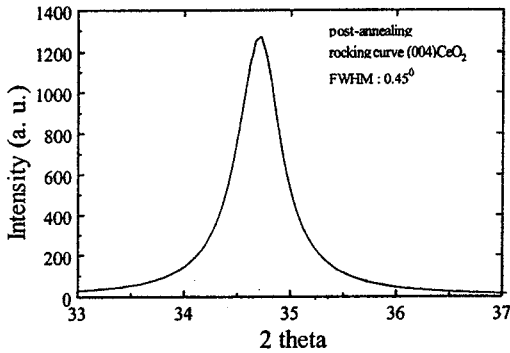


(그림 3) R-cut 사파이어 기판 위에 성장된 45 nm 두께의 CeO_2 박막의 표면에 대한 (a) post-annealing 전과 (b) post-annealing 후의 원자현미경 (AFM) 사진.



(그림 4) R-cut 사파이어 기판 위에 45 nm 두께의 CeO_2 박막을 성장시킨 후 (a) post-annealing 전과 (b) post-annealing 후의 CeO_2 박막에 대한 X선 회절분석 실험결과.

동일하게 나타났다. (그림 4)에서 (200) peak에 대한 $\Delta(\theta-2\theta)$ reflex의 full width half maximum (FWHM)은 0.2 ~ 0.26° 정도의 작은 값을 지니며 (400) peak에 대한 FWHM은 약 0.4° 정도인 것으로 관측되었다. 또한 (그림 5)에서 post-annealing 과정을 거친 CeO_2 박막 (Ce-5 sample)의 (400) peak (cubic 구조의 경우 (004) peak과 동일함)에 대한 rocking curve data로부터 측정된 $\Delta\omega$ 가 0.4 ~ 0.5° 사이의 작은 값을 지님을 알 수 있다. 성장된 CeO_2 박막에 대한 post-annealing 과정이 CeO_2 박막의 표면상태를 뚜렷이 개선시키게 되는 결과는 이미 보고된 바 Graboy 등에 의한 결과나 Lin 등에 의한 결과와 동일한데 [2, 10] 여기서 주목할 만한 사실은 $\Delta\omega$ 와 $\Delta(\theta-2\theta)$ 의 크기가 증착률과 스퍼터링 기체의 총압력의 변화에 대해 큰 차이를 보이지 않는다는 것과 CeO_2 박막에 대한 높은 온도에서의 후열처리과정이 CeO_2 박막의 구조에는 큰 변화를 주지 않는다는 사실이다. 따라서 증착률이 큰 경우 CeO_2 박막의 표면 거칠기가 커지는 것은 단지 CeO_2 박막의



(그림 5) 780°C 에서 r-cut 사파이어 기판 위에 45 nm 두께의 CeO₂ 박막을 성장시킨 후 이 박막에 대한 post-annealing 과정을 거친 후 측정된 ω -scan 결과.

성장 온도인 780 °C가 Ce 원자들에게 충분한 mobility를 주기에는 낮은 온도이기 때문으로 여겨진다. 이러한 점에서 1000 °C에서의 후열처리과정은 보다 원활히 Ce 원자들이 확산할 수 있게 해 줌으로서 CeO₂ 박막의 표면상태가 개선될 수 있도록 해주는 과정이 된다고 여겨지며 이러한 표면상태의 상대적인 개선 정도는 CeO₂ 박막의 증착률이 큰 경우에 보다 뚜렷하게 나타남을 관측할 수 있다. 또한 in-situ 성장된 두께가 작은 CeO₂ 박막 (여기서는 40 nm 이하)의 표면상태를 개선하는 방법으로는 CeO₂ 박막의 증착률을 낮추는 방법이 효과적인 방법이 됨을 확인할 수 있었다.

2. Structural and electrical properties of YBCO films on CeO₂ buffered r-cut sapphire substrates

본 연구에서는 또한 CeO₂ 박막을 사파이어 기판 위에 YBCO 박막을 성장시키기 위한 완충층 (buffer layer)으로 사용한 경우 CeO₂ 완충층에 대한 산소분위기에서의 후열처리 과정이 CeO₂ 완충층 위에 성장된 YBCO 박막의 구조적, 전기적 특성에 어떠한 영향을 미치는 가를 살펴보았다. 이러한 목적으로 사파이어 기판 위에 CeO₂ 완충층이 성장된 기판 (CeO₂-buffered sapphire substrate, 줄여서 'CbS'로 기술되고 있음)이 사용되었는데 박막성장장치 (film growth chamber) 내에서 성장된 상태 그대로의 CbS ('in-situ CbS'라 함)과 in-situ CbS를 산소분위기에서 후열처리한 CbS ('post-annealed CbS'라 함)가 사용되었는데 사용된 완충층의 R-factor는 각각 0.67

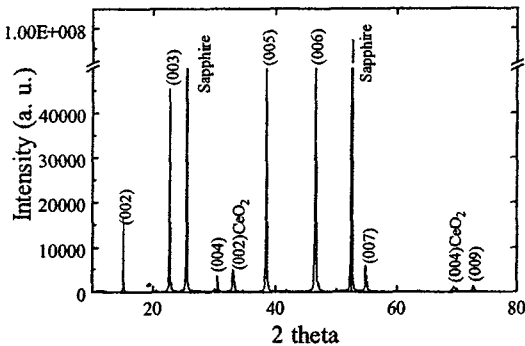
(표 2) 45 nm 두께의 in-situ 성장된 CbS와 post-annealed CbS 위에 성장된 YBCO 박막의 거칠기의 YBCO 박막 두께에 대한 변화. Post-annealing 된 CeO₂ buffer layer는 1000 ° C에서 열처리된 것이다. 여기서 'O'는 post-annealing 된 박막을 뜻하고 'X'는 in-situ 성장된 상태 그대로의 박막을 뜻한다.

sample No.	Thickness (Å)	Total pressure (mTorr)	Post-Annealing	Roughness (RMS)
YBCO-1a	1400 Å	100	X	207 Å
YBCO-1b	1400 Å	100	O	6.5 Å
YBCO-2a	3000 Å	100	X	305 Å
YBCO-2b	3000 Å	100	O	11 Å

nm와 0.28 nm이다. 각각의 CbS 위에 성장된 YBCO 박막의 두께는 140 nm와 300 nm로서 X선 회절분석 결과 사용된 CbS 기판에 대한 후열처리 과정 여부에 상관없이 YBCO 박막 들이 모두 잘 c 축 성장된 것으로 관측되었는데, (그림 6)은 45 nm의 post-annealed CbS 위에 성장된 300 nm 두께의 YBCO 박막 ([표 2]에서 sample YBCO-2b)에 대한 X선 회절분석 결과로서 (00l) peak만이 관측되고 있으며 YBCO 박막이 c축 방향으로 에피 성장되었음을 보여준다. (그림 7)에서 볼 수 있듯이 이 YBCO 박막에 대한 (005) peak의 $\Delta\theta$ 는 0.47° 이고 ($\theta - 2\theta$) reflex에 대한 FWHM은 0.16°이다. In-situ CbS 위에 성장된 YBCO 박막에 대한 X선 회절실험 결과도 비슷한 것으로 관측되었다. 한편 in-situ CbS 위에 성장된 YBCO와 post-annealed CbS 위에 성장된 YBCO의 저항 data는 거의 차이가 없는 것으로 관측되었는데 (그림 8)은 45 nm 두께의 CeO₂ buffer layer 위에 성장된 300 nm 두께의 YBCO 박막 (sample YBCO-2b)에 대한 저항 data이다. 측정 결과 post-annealed CbS 위에 성장된 YBCO 박막의 경우 in-situ CbS 위에 성장된 YBCO 박막에 비해 초전 도상이 되기 시작하는 onset 온도와 저항이 완전히 0이 되는 영 저항온도 (zero-resistance temperature) 간의 차이인 전이온도 (ΔT)가 상대적으로 약간 작은 값을 지니고 또한 300 K에서의 저항과 100 K에서의 저항과의 비인 $R(300\text{ K})/R(100\text{ K})$ 의 값이 약간 크게 됨을 알 수 있었는데 그 차이는 별로 크지 않음을 알 수 있었다. 이러한 것은 post-annealed CbS 위에 성장된 YBCO 박막과 in-situ CbS 위에 성장된 YBCO 박막의 결정구조와 dc 혹은 낮은 주파수에서 측정된 전기적 특성이 사용된 CbS에 대한 후열처리 과정에 상관없이

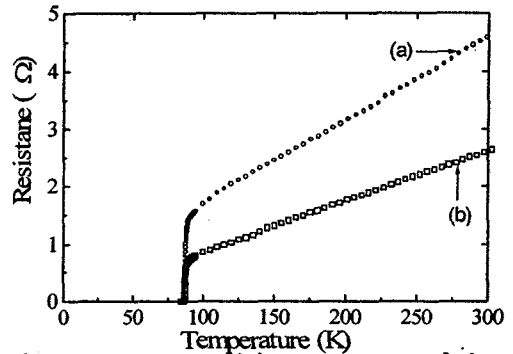
비슷하게 나타남을 의미 한다. 참고로 in-situ CbS 위에

거칠기를 보여주는 AFM data로서 R-factor가 2.3 nm와



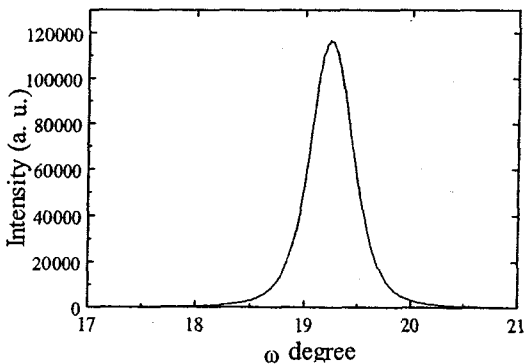
(그림 6) 45 nm 두께의 CbS 위에 성장된 300 nm 두께의 YBCO 박막에 대한 X선 회절분석 결과. YBCO 박막의 결정구조가 c 축 방향으로 성장한 단결정 구조임을 보여주는 (00l) peak 만이 관측됨을 알 수 있다.

성장된 YBCO 박막의 영-저항온도는 87 K 정도, 전이구간은 0.8 ~ 1 K 정도 이고 R(300 K)/R(100 K)의 값은 3 정도이다. 한편 post-annealed CbS 위에 성장된 YBCO 박막과 in-situ CbS 위에 성장된 YBCO 박막 간에는 두 종류의 박막이 지닌 표면 거칠기 (surface roughness)에서 큰 차이를 보이는 것으로 관측되었다. (그림 9a)와 (그림 10a)는 in-situ CbS 위에 성장된 각각 두께가 140 nm와 300 nm인 YBCO 박막의 표면에 대한 AFM data로서 R-factor가 각각 48 nm와 112 nm의 값을 지니고 있음을 보여준다. 이러한 YBCO 박막의 표면 거칠기는 YBCO 박막을 post-annealed CbS 위에 성장할 경우 뚜렷하게 개선되는 것으로 관측되었는데 (그림 9b)와 (그림 10b)는 각각 post-annealed CbS 위에 성장된 두께가 140 nm와 300 nm인 YBCO 박막의 표면

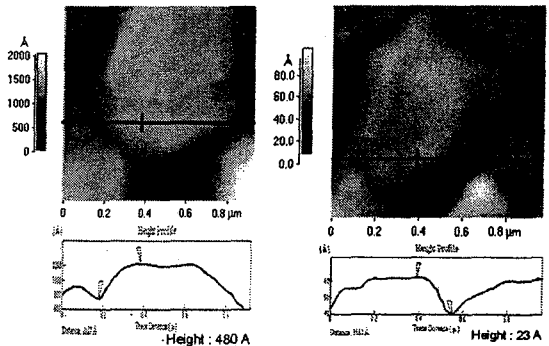


(그림 8) (a) post-annealing 전과 (b) post-annealing 후의 45 nm 두께의 CbS 위에 성장된 YBCO 박막의 저항측정 결과. YBCO 박막의 두께는 300 nm 이다.

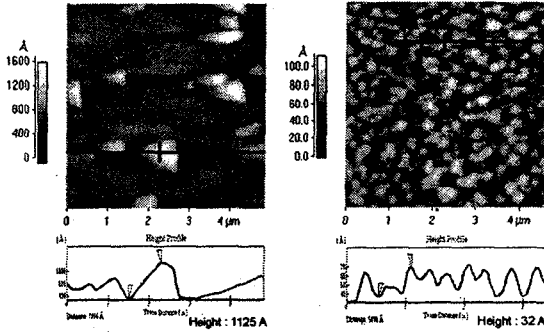
4 nm의 매우 작은 값을 지니고 있음을 보여준다. Post-annealed CbS 위에 YBCO 박막을 성장시킬 경우 YBCO 박막의 표면상태가 현저하게 개선되는 이유는 아직 연구되어야 할 부분이라고 할 수 있는데 이러한 후열처리 효과는 post-annealed MgO 기판 위에 성장된 YBCO 박막에서도 Moechly 등에 의해 관측된 바 있다 [14]. Moechly 등이 후열처리된 (post-annealed) MgO 기판에 대해 언급한 바와 같이 post-annealed CbS 표면에는 후열처리 과정에서 원자들의 재배열이 일어나서 원자정도 크기의 수 많은 계단 형태가 존재할 수 있으며 이러한 계단형태의 존재가 YBCO 결정성장의 기초로 작용하여 성장된 YBCO 박막의 표면상태가 개선되게 되는 것으로 여겨지는데 이에 대한 정확한 이유를 밝히려는 연구는 현재 진행 중이다.



(그림 7) Post-annealed CeO₂ buffered r-cut 사파이어 기판 위에 성장된 300 nm 두께의 YBCO 박막의 (005) peak 에 대한 ω -scan 결과. FWHM 의 값 ($\Delta\omega$)은 0.47° 이다.



(그림 9) (a) post-annealing 전과 (b) post-annealing 후의 CbS 위에 성장된 140 nm 두께의 YBCO 박막의 표면에 대한 원자현미경 (AFM) 사진.

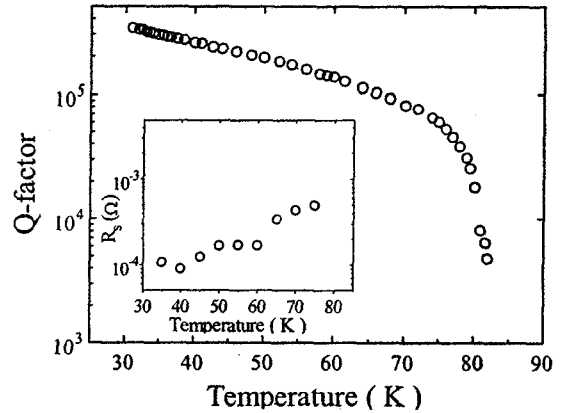


(그림 10) (a) post-annealing 전과 (b) post-annealing 후의 CbS 위에 성장된 300 nm 두께의 YBCO 박막의 표면에 대한 원자현미경 (AFM) 사진.

앞서 언급한 바와 같이 CbS 위에 성장된 YBCO 박막이 큰 신호를 처리해야 하는 송신기 모듈용의 마이크로파 소자 제작 시 유용하게 사용될 수 있음을 고려하여 본 연구에서는 post-annealed CbS 위에 성장된 300 nm 두께의 YBCO 박막의 표면저항도 측정하였다. 표면저항의 측정은 YBCO 박막이 endplate로 사용된 rutile-loaded cavity 공진기를 이용하여 행하여 졌는데 (그림 11)은 TE₀₁₁-mode cavity 공진기의 비부하 양호도 (unloaded Q)의 온도의존성 data로서 측정된 공진 주파수는 40 K, 60 K, 75 K에서 각각 8.575, 8.65, 8.72 GHz 이다. 이 그림에서 비부하 양호도는 40 K, 60 K, 75 K에서 각각 360000, 155000, 70000으로서 (그림 11)의 inset에 나타난 바와 같이 이러한 값에서 구한 YBCO 박막의 표면저항은 40 K, 60 K, 75 K에서 각각 91 μΩ, 169 μΩ, 496 μΩ 이다. 참고로 TE₀₁₁-mode rutile-loaded cavity 공진기의 Q₀로부터 표면저항을 계산할 때 사용한 rutile의 loss tangent (tanδ) 값으로는 주파수 7.5 GHz에서 40 K, 60K, 75 K에서 각각 1.3 x 10⁻⁶, 3.3 x 10⁻⁶, 6.15 x 10⁻⁶ 임을 이용하였는데 이 값들을 공진주파수에서의 tanδ로 환산하기 위해서 tanδ ∝ f^{1.7} (f는 측정 주파수)의 관계를 이용하였다[15].

요 약

(100) CeO₂ 박막을 on-axis rf magnetron sputtering 방법으로 780 °C의 온도에서 r-cut sapphire 기판 위에 성장시켰다. 두께가 60 nm 이상인 CeO₂ 박막을 분당 3 ~ 4 nm/min의 증착률로 총압력 40 ~ 100 mtorr의 분위기에서 성장시킨 경우 in-situ 성장된 CeO₂ 박막을 1000 °C의 온도에서 후열처리 (post-annealing)한 경우 표면 거칠기가 0.6 ~ 1 nm인 CeO₂ 박막을 제작할 수



(그림 11) Post-annealed CbS 위에 성장된 300 nm 두께의 YBCO 박막을 endplate로 이용한 rutile-loaded cavity 공진기의 TE₀₁₁ mode unloaded Q (Q₀)의 온도의존성 측정결과. Inset: Rutile-loaded TE₀₁₁ mode 공진기의 Q₀로부터 계산된 표면저항의 온도의존성 결과.

있었다.

박막의 두께가 40 nm 이하인 CeO₂ 박막의 경우 박막의 증착률을 분당 0.75 nm로 작게 할 경우 in-situ 성장된 CeO₂ 박막의 R-factor는 0.4 ~ 0.8 nm의 매우 작은 값을 갖는 것으로 관측되었다.

CeO₂ 박막의 (200) peak에 대한 rocking curve data로부터 측정된 FWHM는 0.4° 정도인 것으로 관측되었으며 이러한 크기는 분당 0.75 ~ 4 nm의 증착률을 사용한 경우 후열처리 과정의 사용에 상관없이 거의 변화가 없는 것으로 관측되었다. 이는 CeO₂ 박막의 결정구조가 주로 박막성장 시의 성장온도에 의해 결정됨을 보여주는 것이라 할 수 있다.

또한 In-situ 성장된 CbS 위에 성장된 140 ~ 300 nm 두께의 c 축 성장된 YBCO 박막의 경우 CeO₂ 완충층의 R-factor가 대단히 작은 값을 지니더라도 성장된 YBCO 박막의 R-factor는 성장된 YBCO 박막의 두께가 140 nm와 300 nm인 경우 각각 48 nm와 112 nm의 대단히 큰 값을 지니는 것으로 관측된 반면 post-annealed CbS 위에 성장된 YBCO 박막의 R-factor는 대단히 작은 값을 지니는 것으로 관측되었다. 실험결과 post-annealed CbS 위에 성장된 두께가 140 nm와 300 nm인 YBCO 박막의 R-factor는 각각 2.3 nm와 4 nm의 매우 작은 값을 지니는 것으로 관측되었으며 이 경우 YBCO의 (005) peak의 rocking curve는 FWHM의 크기가 0.5° 이내인 것으로 관측되었다. 그리고 post-annealed CbS 위에 성장된 YBCO 박막의

마이크로파 특성을 TE₀₁₁ mode rutile-loaded cavity 공진기를 이용하여 측정한 결과 75 K와 40 K에서 측정주파수가 8.7 GHz인 경우 표면저항이 각각 496 $\mu\Omega$ 와 90.8 $\mu\Omega$ 인 매우 우수한 특성을 지닌 것으로 관측되었다.

참 고 문 헌

- [1] F. Wang and R. Woerdenweber, *Thin Solid Films*, vol. 227 (1993) 200
- [2] R. J. Lin, L. J. Chen, L. J. Lin, Y. C. Yu, C. W. Wang, E. K. Lin: *Jpn. J. Appl Phys.* vol. 35 (1996) 5806.
- [3] G.L. Skofronick, A. H. Carim, S. R. Foltyn, and R. E. Muenchausen, *J. Mater. Res.*, vol.8 (1993)2785.
- [4] K. Frohlich, J. Souct, A. Rosova, D. Machajdik, I. E. Graboy, V. L. Svetchnikov, A. Figueras and F. Weiss, *Supercond. Sci. Technol.* vol. 10 (1997) 657.
- [5] M. Maul, B. Schulte, P. Haussler, J. Moses, M. Mathur, T. Venkatesan, J.C. Brasunas and B. Lakew : *Appl. Phys. Lett.* vol. 67 (1995) 1920.
- [6] M. Maul, B. Schulte, P. Haussler, G. Frank, T. Steinborn, H. Fuess, H. Adrian: *J. Appl. Phys.* vol. 74 (1993) 2942.
- [7] M. W. Denhof, J. P. McCaffrey : *J. Appl. Phys.* vol. 79(7) (1991) 3986.
- [8] X. D. Wu, S. R. Foltyn, R. E. Muenchausen, D. W. Cooke, A. Pique, D. Kalokitis, V. Pendrick, E. Belohoubek: *J. Supercon.* vol. 5 (1992) 353.
- [9] P. Berchant, R. D. Jacowitz, K. Tibbs, R. C. Taber, S. S. Laderman, *Appl. Phys. Lett.* vol. 60 (1992) 763.
- [10] E. Graboy, N. V. Markov, W. Maleev, A.R. Kaul, S. N. Polyakov, V. L. Svetchnikov, H. M. Zandbergen, K. H. Dahmen: *Journal of Alloys and compounds* vol. 251 (1997) 318.
- [11] C. C. Chin, R. J. Lin, Y. C. Yu, C. W. Wang, E. K. Lin, W. C. Tsai, T. Y. Tseng : *Physica C*, vol. 260 (1996) 86.
- [12] G. Zaitsev, R. Woerdenweber, G. Ockenfuss, R. Kutzner, T. Koenigs, C. Zuccaro, and N. Klein, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* vol. 7(2) (1997) 1483.
- [13] D. Mashtakow, I. M. Kotelyanskii, V. A. Luzanov, P. B. Mozhaev, G. A. Ovsyannikov, I. D. Bdikin, *Appl. Supercond. Eucas* (1997)
- [14] H. Moechly, S. E. Russek, D. K. Lathrop, R. A. Buhman, Jian Li, J. W. Mayer : *Appl. Phys. Lett.* vol.57(16) (1990) 1687.
- [15] N. Klein, C. Zuccaro, U. Daehne, H. Schulz, and N. Tellman, *J. Appl. Phys.* 78(11) (1995) 6683.